

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 04-077308

(43)Date of publication of application : 11.03.1992

(51)Int.Cl.

C01B 31/22
B01J 19/00
F01N 3/02
F02C 3/08
F25J 1/00

(21)Application number : 02-188290

(71)Applicant : CHUGOKU ELECTRIC POWER CO
INC:THE

(22)Date of filing : 16.07.1990

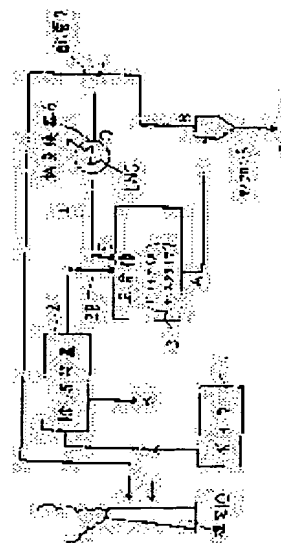
(72)Inventor : SHIMIZU MARESHIGE
SAKOTANI AKIRA
MIYASAKO MASANORI
KATSUBE HIROMITSU
SHIMADA YUTAKA
MORIYASU HIROTAKE

(54) METHOD AND DEVICE FOR RECOVERING CO₂

(57)Abstract:

PURPOSE: To cool waste combustion gas approximately at ordinary pressure in this method utilizing the cold of LNG by using a gas having a lower solidifying temp. than CO₂ as the low-temp. gas to be mixed into the waste gas.

CONSTITUTION: The waste combustion gas from a boiler 1 is introduced into a dehumidifier 2 and dehumidified to the humidity region where ice is not deposited on a heating surface, and the waste gas containing remaining moisture and CO₂ is introduced into a dry ice crystallizer 3 as a mixing tank. The waste gas is heat-exchanged with the cold LNG introduced through a low-temp. circulating gas pipeline 4, and the obtained low-temp. recirculating dry gas is supplied to the mixing tank 3 and directly mixed with the waste gas to form dry ice. The dry ice is introduced into a cyclone 5 and separated, and the circulating gas (consisting essentially of N₂ and O₂) is sent to a heat exchanger 6. Since the low-temp. circulating gas has a lower solidifying temp. than CO₂, the gas is directly mixed with the waste gas.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or

application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

⑨ 日本国特許庁(JP) ⑩ 特許出願公開
⑪ 公開特許公報(A) 平4-77308

⑫ Int. Cl.⁵ 識別記号 庁内整理番号 ⑬ 公開 平成4年(1992)3月11日
C 01 B 31/22 6345-4C
B 01 J 19/00 6345-4C
F 01 N 3/02 7910-3C
F 02 C 3/08 7910-3C
F 23 J 1/00 8925-4D

審査請求 未請求 請求項の数 6 (全5頁)

⑭ 発明の名称 CO₂の回収方法及びその装置

⑮ 特願 平2-188290

⑯ 出願 平2(1990)7月16日

⑰ 発明者 清水 希 茂 広島県広島市中区小町4番33号 中国電力株式会社内
⑱ 発明者 迫 谷 章 広島県広島市中区小町4番33号 中国電力株式会社内
⑲ 発明者 宮 迫 正 則 広島県広島市中区小町4番33号 中国電力株式会社内
⑳ 発明者 勝 部 博 充 広島県広島市中区小町4番33号 中国電力株式会社内
㉑ 発明者 島 田 裕 広島県広島市中区小町4番33号 中国電力株式会社内
㉒ 発明者 森 保 博 孝 広島県広島市中区小町4番33号 中国電力株式会社内
㉓ 出願人 中国電力株式会社 広島県広島市中区小町4番33号
㉔ 代理人 井理士 迎田 昌夫

明 細 書

1. 発明の名称
CO₂の回収方法及びその装置
2. 特許請求の範囲
(1) 燃焼排ガスに低濃度CO₂を混合する事により、燃焼排ガス中のCO₂を冷却固化して分離するCO₂の回収方法において、低濃度CO₂がCO₂よりも凝縮温度の低いガスである事を特徴とするCO₂の回収方法。
(2) 燃焼排ガスに混合する低濃度CO₂が燃焼再使用される低濃度CO₂である特許請求の範囲第1項に記載のCO₂の回収方法。
(3) 燃焼再使用される低濃度CO₂が燃焼排ガスよりCO₂を分離した残りガスである特許請求の範囲第1項乃至第2項の内いずれか1項に記載のCO₂の回収方法。
(4) 低濃度CO₂が、LNG(液化天然ガス、以下同様)の液化熱を利用して冷却された低濃度CO₂である特許請求の範囲第1項乃至第3項の内いずれか1項に記載のCO₂の回収方法。
- (5) 燃焼排ガスと低濃度CO₂を混合する混合槽と回収分離槽とLNGの冷熱で回収ガスを冷却する熱交換器とをガス循環系に備えて成る事を特徴とするCO₂の回収装置。
(6) 混合槽がドライアイスクリスタライザである特許請求の範囲第5項に記載のCO₂の回収装置。
3. 発明の詳細な説明
[産業上の利用分野]
本発明はCO₂の回収方法及びその装置に関し、より詳しくはLNGの冷熱を利用して燃焼排ガスからのCO₂を回収方法及びその装置に関する。
[従来技術と課題]
近年、化石燃料の大半を海外からの輸入に頼らざるを得ないわが国においては、発電所の発生電力の安定のために、燃料の多様化と省エネルギーの観点から、燃料が液化して輸送・貯蔵し、これを燃料として用いた高効率ガスタービン複合発電による発電所の建設が推進されている。

しかしながら、液化天然ガス(LNG)をガス燃料として利用する際に、必要な液化熱を大気あるいは海水から得る従来の方法では、LNGの保有する冷熱が自然環境に放出され、液化エネルギーの損失となっている。

一方、最近大気中の炭酸ガス(CO₂)量が増加し、温室効果と呼ばれる大気温度の上昇との関係が問題視されている。炭酸ガス発生量増加の原因は、化石燃料の燃焼により生ずるものが大半である。

従来は、排ガス中の一部の炭酸ガスを濃縮し、ガス状・液体状またはドライアイス化したり、炭酸ガスを出発原料として炭素・安価な樹脂を製造していたが、1987年における炭酸ガスの上記用途の市場は1000万トン/年であった。一方、国内で排出している炭酸ガスの総量は78,000万トン/年であり、実質的には当該ガスの回収をほとんど行っており、そのまま大気へ放出していた。

また、大気へ放出された炭酸ガスの1/2は

ス等の圧力を3重圧力未満の圧力に加圧し、低濃度CO₂と直接凝縮させ、炭酸ガスを回収(分離)するドライアイスの製造法」である。

従って、これらはいずれも炭酸ガスを回収する事が要件となり、一般の燃焼排ガスの処理には適しないものである。

また炭酸ガスを含む排ガスにLNGを直接混合して冷却するという手段は、その冷却されたLNGを燃料ガスとして再使用しようとする低濃度CO₂の回収方法において、低濃度CO₂よりも凝縮温度の低いガスである事を特徴とするCO₂の回収方法、

従って、これらの従来技術は炭酸排ガスからCO₂を回収する手段としてそのまま採用する事は出来なかった。

そこで本発明者等は炭酸排ガスを常圧付近で冷却処理してCO₂を分離する手段につき鋭意研究の結果本発明に到達した。

[発明の目的]

本発明の目的はLNGの冷熱を利用して常圧付近で炭酸排ガスを冷却処理する事によりCO₂を

海洋等に吸収され、残りは大気中に残存すると云われているが、近年は炭酸排ガスの量の増加のために海洋等の吸収では追いつかず、次第に大気中に蓄積される傾向がある。

従って、大気中の炭酸ガス量の増加により、近年、温室効果と呼ばれる大気温度の上昇が問題視されている。

そこでCO₂を炭酸排ガスより回収する手段が再検討された結果、前述のLNGの冷熱を利用してCO₂の回収手段が環境対策からも望ましいと判断された。

従来技術を見ると、顕微鏡技術として冷熱を利用したCO₂の回収手段が「ドライアイスの製造(方)法」という名称で既に2,3提案されている。

例えば特開昭54-138892に記載の発明は、「常圧以上3重圧力未満の圧力で炭酸ガスをLNG等の低濃度CO₂中に吹き込んで冷却固化して分離するドライアイスの製造方法」であり、また特開昭59-35013に記載の発明は、「炭酸ガ

ドライアイスとして回収分離するCO₂の回収方法及びその装置を提供するにある。

本発明の他の目的は限られた冷熱エネルギーを有効利用する事、可能な炭酸排ガスからのCO₂の回収方法及びその装置を提供するにある。

[発明の構成]

本発明により、炭酸排ガスに低濃度CO₂を混合する事により燃焼排ガス中のCO₂を冷却固化して分離するCO₂の回収方法において、低濃度CO₂よりも凝縮温度の低いガスである事を特徴とするCO₂の回収方法、

前記CO₂の回収方法であって、炭酸排ガスに混合する低濃度CO₂が燃焼再使用される低濃度CO₂であるもの、

前記CO₂の回収方法であって、燃焼再使用される低濃度CO₂が炭酸排ガスよりCO₂を分離した残りガスであるもの、

前記CO₂の回収方法であって、

低濃度CO₂が、LNGの液化熱を利用して冷却さ

れた低温ガスであるもの、及び

燃焼排ガスと低温循環ガスとを混合する混合槽と固気分離槽とLNGの冷熱で循環ガスを冷却する熱交換器とをガス循環系に備えて成る事を特徴とするCO₂の回収装置、

前記CO₂の回収方法であって、混合槽がドライアイスクリスタライザであるもの

が提供される。

以下に本発明を詳細に説明する。

第1図は本発明の系統図である。

第1図において、ボイラ1の燃焼排ガス中には水分が含まれているので、該排ガスを除湿装置2を用いて伝熱面に水が着露しない湿度領域まで冷却した後、残存する水分と乾燥ガスを含む排ガスを配管2Bを経て混合槽であるドライアイスクリスタライザ3に導き、低温循環ガス配管4(及び同供給ノズル4A)を経て導入される、LNG冷熱と熱交換された低温の再循環ガスとを混合槽

機によりドライアイスを生成する。

生成したドライアイスは、循環ガスに同時されて固気分離槽であるサイクロン5に導かれ、ガスと固化したドライアイスが分離される。

分離されたドライアイスは、サイクロン5の下から系外へ抜き出される。

一方、乾燥ガスをドライアイスとして固化・分離された後の大半の循環ガス(N₂、O₂が主体)は熱交換器6に導かれる。

ここで、LNG冷熱と間接熱交換されて低温(約-150~-165℃)の乾きガスとなり、ドライアイスクリスタライザ3に導き供給され、乾燥ガスを含む排ガスと直接接触し、乾燥ガスをドライアイスとして固化する。

循環ガスの経路は第1図上A→B→C→D→Eである。

循環ガスの一部は、配管7を経て燃焼10を導って系外に排出される。

【作用】

乾燥ガスの固化により生成するドライアイス

の昇華温度は-78.5℃(1atm)である。

そこで排ガスと低温ガスを直接混合して混合ガスの温度を昇華温度以下に保持することにより乾燥ガスを固化できる。しかしながら、排ガス中には乾燥ガス以外のN₂、O₂、H₂O等が含まれてゐるので乾燥ガスの分圧は低い。従って、-78.5℃以下に冷却しないと排ガス中の乾燥ガスの固化は生じない。

本発明においては低温ガスがCO₂よりも昇華温度の低いガスでなければならないが、その理由には次の通りである。

すなわち、低温(循環)ガスが若しCO₂よりも昇華温度の高いガス成分(例えば水蒸気)を含む場合、そのガス成分が先に凝縮し、凝結し終わる迄は全体のガス温度が下がらない事になるからである。

しかも冷熱エネルギーもその間消費されるので冷熱源に限りがあるときには不具合である。

LNGは-150~-165℃の低温状態にあるが、これを液化する時に発生する潜熱を有効利用

【発明の効果】

本発明を実施する事により前記目的のすべてが達成される。

すなわち、LNG冷熱を用いて排ガス中の乾燥ガスを効率良く固化分離することが出来る。

従って本発明は工業上極めて有益である。

本発明を以下の実施例により更に詳細に説明する。

【実施例】

小型装置を使用して排ガス中の乾燥ガスの固化・回収を行った。

(1) 装置仕様
ドライアイスクリスタライザ*: 径100×660mm

サイクロン: 径30×140H

(2) 運転条件

排ガス量: 0.48~0.72Nm³/h

CO₂濃度: 3.5~10vol. %

排ガスとして、N₂、CO₂、H₂Oの混合乾燥ガスを使用した。

クリスタライザ自体を迅速増に入れ温度が上がらないようにする。

クリスタライザ入口に乾燥排ガス供給ノズルと低温循環ガス供給ノズル4Aが併設しており、排ガス供給ノズル2Bから吹込まれる排ガス(10~45℃)と低温循環ガス供給ノズル2Bから吹込まれる低温循環ガス(本実施ではN₂、使用-150~-160℃)とがクリスタライザ内部で混合され、ドライアイスが生成するようにになっている。

CO₂濃度は、LNG乾燥ガスの排ガスの一般的な組成を参考にした。

冷却ガス量: 6Nm³/h

冷却ガスとして、液化窒素を蒸発させて得た低温N₂ガス(-140~-160℃)を使用した。

(3) 運転方法

上記仕様の小型装置を製作し、乾燥排ガスと低温ガスとを直接混合することにより、CO₂をドライアイスとして固化・回収した。

第1表に運転条件及び運転結果を示す。この結果、乾燥排ガス中の乾燥ガスの約90vol. %以上をドライアイスとして固化・回収する事が出来た。

*ドライアイスクリスタライザ

第2図は実験室規模のドライアイスクリスタライザの断面図である。

内部のドライアイス形成状態を凝視し易い様に本体を強化ガラスで作った。ドライアイスクリスタライザの周囲は断熱材で覆うか、ドライアイス

第1表

RUN NO.	1	2	3
排ガス			
ガス量(Nm ³ /h)	0.48	0.72	0.69
ガス組成(vol. %)			
CO ₂	10.0	3.5	3.5
N ₂	90.0	96.5	96.5
H ₂ O	1.0	1.0	1.0
低温循環ガス			
ガス量(Nm ³ /h)	6.0	6.0	6.0
排ガス出口ガス			
ガス量(Nm ³ /h)	6.0	6.0	6.0
CO ₂ 濃度(vol. %)	6.0	6.0	6.0
温度(℃)			
排ガス入口	-144.0	-148.0	-148.0
低温循環ガス	-145.0	-145.0	-145.0
CO ₂ 固化率(vol. %)	94.6	94.3	94.9

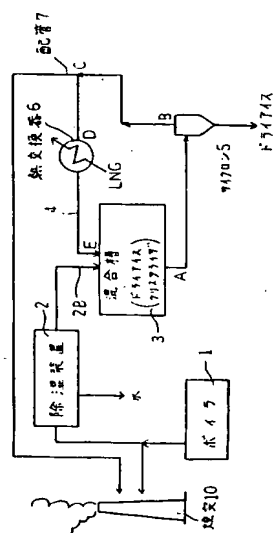
4. 図面の簡単な説明

第1図および第2図は夫々本発明系統図および
ドライアイスクリスタライザの断面図である。

- 1 ホイラ、2 除塵装置、
- 2B 乾燥排ガス用配管、
- 3 混合槽（ドライアイスクリスタライザ）
- 4 低温循環ガス用配管、
- 5 固気分離槽、
- 6 熱交換器、
- 7 乾燥排ガス用配管。

特許出願人 中国電力株式会社
代 理 人 弁理士 渡田昌夫

第 1 図



第 2 図

